

Doktori értekezés tézisei:

**Fotoemissziós és pásztázó
alagútmikroszkópos mérések modellezése
Dirac-féle elektronok vizsgálatánál**

Rakya Péter

Eötvös Loránd Tudományegyetem, Természettudományi Kar
Komplex Rendszerek Fizikája Tanszék

Témavezető: Dr. Cserti József

ELTE TTK, Fizika Doktori Iskola

Statisztikus és Biológiai Fizika Program

Iskolavezető: Dr. Csikor Ferenc

Programvezető: Dr. Kürti Jenő

Budapest

2012.

1. Bevezetés

Az egyrétegű grafén királis és a második generációs topologikus szigetelők helikális felületi elektronállapotainak spektrumát egyaránt Dirac-kúpokkal írhatjuk le. Grafén esetében a kvantum-elektrodinamikával vett párhuzam számos relativitáselméletből ismert effektus vizsgálatára nyitotta meg a lehetőséget. Ugyanakkor a topologikus szigetelők a spintronika területén kecsegtetnek érdekes tulajdonságokkal. Ezen fizikai rendszerek közös tulajdonsága azonban, hogy vizsgálatukra kiváltképp alkalmasak az olyan felületérzékeny kísérleti eljárások, mint például a fotoemissziós spektroszkópia, vagy pásztázó alagútmikroszkópos technika.

A fotoemissziós spektroszkópia nagy múlttal rendelkező, különböző halmazállapotú anyagok elektronszerkezetének vizsgálatára alkalmas kísérleti eljárás. A fotoemissziós effektus első elméleti leírását Einstein dolgozta ki, felhasználva a fény leírására akkoriban alkotott kvantumos elméletét. Az elmélete szerint, ha egy mintára a rá jellemző *kilépési munkánál* nagyobb energiájú foton esik, akkor a foton és elektron kölcsönhatásának következtében a mintából az elektron ki tud lökődni. A kilökött elektront *fotoelektronnak* nevezzük. Az elméletre vezető kísérletek során egy mintát monokromatikus fénynyalábbal világítottak meg vákuumsőben. Lényegét tekintve napjainkban is azonos alapokon nyugvó kísérleti elrendezésekkel tanulmányozzák különböző anyagok elektronszerkezetét, azonban a fotoelektronok detektálására használt berendezés képes az elektronok maximális kinetikus energiája helyett azok energiájának és impulzusának teljes eloszlását mérni.

Az utóbbi évek fejlődése a spintronika területén serkentette a fotoemissziós mérési technika kiterjesztését az elektronok spinjének tanulmányozására is. Ennek során a fotoelektronok spin-polarizációját két ún. Mott-detektor segítségével lehet megállapítani. Mindkét detektor az elektronnyaláb detektor síkjába eső spin-polarizációját tudja megmérni. A két síkvetületből az elektronnyaláb háromdimenziós spin-polarizációja meghatározható.

A pásztázó tűszondás mikroszkópos mérési módszerek, a fotoemissziós technikákhoz hasonlóan, kiválóan alkalmasak felületi tulajdonságok vizsgálatára, mint például a felület topográfiája, kémiai kötések, dielektromos és mágneses tulajdonságok, stb. Az egyes tulajdonságok mérései azonban teljesen különböző szempontok szerint megépített mérési berendezéseket igényelnek. A két legelterjedtebb módszer a *pásztázó alagútmikroszkóp* (STM: scanning tunneling microscope) és *pásztázó erőmérési mikroszkóp* (SFM: scanning force microscope) technikák. Mindkét esetben éles, vezető anyagból készült tű és a vizsgált felület kölcsönhatását vizsgálják. Az STM mérés során a tű és a minta között átfolyó alagútáram, míg az SFM mérés során a tű és felület közti erő a központi mennyiség. Az STM mérési eljárás egy másik meghatározó mennyisége a tűszondára kapcsolt feszültség a vizsgált felülethez képest. Az alagútáram(I) -feszültség(V) függvény-

ből a felületi elektronállapotok tulajdonságaira következtethetünk. Mivel az STM kontaktusra kapcsolt V_{bias} feszültség mellett (zérus hőmérsékleten) az alagútáramban az E_F és $E_F + eV_{bias}$ energiatartományba eső elektronállapotok vesznek részt (itt E_F a minta Fermi-energiája, e pedig az elektrontöltés), az elektronállapotok tulajdonságait az energia függvényében a dI/dV differenciális vezetőképességgel lehet tanulmányozni.

Az STM technika előnye a fotoemissziós módszerrel szemben, hogy a Fermi-energia alatt és felett egyaránt alkalmas a minta elektronállapotainak vizsgálatára. Felületi hibáktól mentes, szabályos kristályfelület esetén meghatározható a felületi (és a kisebb mértékben járulékat adó tömbi) elektronállapotok $\rho_0(E)$ állapotossűrűsége. Felületi hibák körül (pont- és vonalhibák) a lokális állapotssűrűség lényegesen eltér a homogén rendszerre jellemző $\rho_0(E)$ -től, az elektronok dinamikájától függő oszcillációk figyelhetők meg a lokális állapotssűrűségben. Az állapotssűrűség-hullámok jellemző jegyei (oszcillációs hullámhossz, lecsengési tulajdonságok) az elektronállapotok spektrumának tulajdonságaival magyarázhatóak.

2. Célkitűzések

2.1. Foton és anyag kölcsönhatása. A fotoemissziós folyamat modellezése

A grafénen és topologikus szigetelőkön végzett fotoemissziós mérési eredmények megértésének érdekében az értekezésben áttekintem a fotoemissziós folyamat elméleti leírását. A fotoelektronok intenzitás-eloszlását meghatározó mennyiségek a Bloch-állapotok állapotssűrűsége, illetve az intenzitás-eloszlás anizotrópiájáért felelős átmeneti mátrixelemek. Az állandó energiás (vagy impulzusú) beütéscsúcsok kiszélesedését számos kísérleti effektus mellett (véges energia és impulzus felbontás, véges hőmérséklet) az elemi gerjesztések között fellépő kölcsönhatások is befolyásolják.

2.2. A fotoelektronok intenzitás-eloszlásának leírása grafén esetében

Grafén esetében a kétfogású szimmetriával rendelkező fotoelektron intenzitás-eloszlást az irodalomban a grafén hatszögrácsát alkotó két alrácából kilökött fotoelektronok interferenciájának tulajdonították. Ennek következtében célom egy általános homogén (egy elektron) kölcsönhatással kiegészített modell esetében a fotoelektronok intenzitás-eloszlására alkalmas összefüggés megadása, mely közvetlenül a Hamilton-operátorral kapcsolja össze az intenzitás-eloszlást. Ezzel az összefüggéssel különböző kölcsönhatások hatása vizsgálható a fotoelektronok intenzitás-eloszlásán.

2.3. A fotoelektronok spin-polarizációjának leírása

A detektált elektronok spin-polarizációjának mérése az impulzus és spin szerinti felbontású fotoemissziós eljárások segítségével sokat fejlődött az elmúlt évek során. A fotoelektronok intenzitás-eloszlását leíró összefüggést általánosítva, a fotoelektronokon mért, tetszőleges fizikai mennyiség eloszlását leíró összefüggést vezetünk le. A tetszőleges fizikai mennyiség várható értékének eloszlását leíró összefüggésben a fizikai operátor spin-operátorral történő megfeleltetése lehetőséget nyújt a spin-polarizációra irányuló mérések modellezésére.

2.4. Spin-pálya kölcsönhatás vizsgálata grafénben

Egyes grafén mintákban az impulzus és spin szerinti felbontású fotoemissziós mérések véges spin-pálya kölcsönhatást mutattak ki. Az irodalomban elterjedt izotróp modellekkel ellentétben anizotróp spin-felhasadásra vezető hosszúhullámú modell kidolgozását tűztem ki célul. A modellből származtatható fizikai mennyiségeket összevetem a mérési eredményekkel, amely során a modell alkalmazhatóságát vizsgálom.

2.5. Háromdimenziós topologikus szigetelők modelljeinek áttekintése

A tömbi kristályok sávszerkezetének topologikus jellemzői fontos szerepet játszanak fizikai tulajdonságaik meghatározásában. Ennek következtében a nem triviális topológiájú tömbi sávszerkezettel rendelkező kristályokban a felületekre lokalizálódott felületi állapotok topologikusan védettek. Ezen kívül a második generációs topologikus szigetelők felületi állapotait a grafénhez hasonlóan egy kétdimenziós Dirac-kúppal írhatjuk le. A helikális Dirac-elektronok vizsgálatának érdekében az értekezésben áttekintem a topologikus szigetelők és ezen belül a második generációs topologikus szigetelők elméletét.

2.6. Bi_2Te_3 kristály felületi állapotainak modelljében szereplő magasabb rendű paraméterek meghatározása

A második generációs topologikus szigetelőket azonos kristályszerkezetű, azonban különböző kémiai összetételű mintákkal valósították meg. Az azonos kristályszerkezet miatt az egyes minták felületi állapotait ugyanaz az effektív modell írja le különböző fizikai paraméterek mellett. A felületi állapotok diszperziójának pontos leírása fontos szerepet játszik egyes effektusok modellezésében, mint például a felületi szennyezők körül kialakuló állapotsűrűség-hullámok. A minták közül a felületi állapotok diszperziójának legnagyobb mértékű kristályrács okozta torzulása

a Bi_2Te_3 kristályokra jellemző. Ezért Bi_2Te_3 kristály esetében megvizsgálom, hogy az irodalomban elterjedt vezető rendű paraméterek mellett a magasabb rendű korrekciók mekkora mértékben befolyásolják a diszperziós reláció leírási pontosságát.

2.7. Pásztázó alagútmikroszkópos vizsgálati módszer áttekintése

A pásztázó alagútmikroszkópos technika a felületre lokalizálódott állapotok térfelbontású vizsgálatára alkalmas kísérleti módszer, mely kiváló eszköznek bizonyul a felületi szennyezők körül kialakuló állapotsűrűség-hullámok vizsgálatára. A grafén és topologikus szigetelők esetében publikált mérési adatok értelmezésének céljából áttekintem a pásztázó alagútmikroszkópos mérési technika legegyszerűbb leírási modelljeit.

2.8. Felületi állapotsűrűség-hullámok elméleti modellezése

Az állapotsűrűség-hullámok irodalomban megtalálható aszimptotikus leírása mellett, fontos lehet megvizsgálni az állapotsűrűség-hullámok viselkedését a szennyezőhöz közelebbi tartományban is. Szembetűnő eltérés mutatkozott például a Bi_2Te_3 kristályon végzett mérési adatok és az állapotsűrűség-hullámok leírására alkalmazott aszimptotikus viselkedést leíró korábbi elméleti jóslat között. Céлом ezért a mérési eredményeket pontosabban leíró modell létrehozása, mely nem csak az aszimptotikus tartományban alkalmazható.

3. Alkalmazott módszerek

3.1. Elektronrendszerek modellezése

Az adott kristályszerkezetű anyagok elektronszerkezetének leírásában gyakori kiindulási pontot jelent a szoros kötésű elektron modell, melyben a Bloch-állapotokat lokalizált atomi elektronpályák koherens szuperpozíciójával adjuk meg. A vezetési tulajdonságokban meghatározó szerepet játszó, Fermi-energia közeli elektronállapotok leírására azonban gyakran a szoros kötésű elektron modellnél lényegesen egyszerűbb, effektív kontinuum modellt alkalmaznak. Az effektív kontinuum modell a szoros kötésű elektron modell hosszúhullámú dinamikáját írja le, mely jó közelítéssel alkalmazható a rácsállandónál sokkal nagyobb karakterisztikus távolságokkal jellemezhető kölcsönhatások esetében.

Szórási potenciálokon való elasztikus szóródáskor (például szennyezők a topologikus szigetelők felületén) a bejövő és a szórt elektronállapotok koherens szuperpozíciójával írhatjuk le az

elektron hullámfüggvényét. Az adott energiájú elektronok valós térbeli eloszlását pedig a különböző bejövő állapotokhoz tartozó hullámfüggvényeknek a homogén rendszer reciprok térbeli lokális állapotsűrűségével vett súlyozott összege adja meg.

3.2. Mérési eljárások modellezése

A fotoemissziós folyamat leírására alkalmazott ún. három lépés modellben a foton és anyag kölcsönhatást perturbációnak tekintve a fotoelektronok intenzitás-eloszlását a Fermi-féle arany-szabály felhasználásával számolhatjuk ki.

A pásztázó alagútmikroszkóp Tersoff-Hamann modellje szerint az alagútáram exponenciális függést mutat a tűszonda és a felület közti távolságtól, és egyenesen arányos a vizsgált minta lokális elektron-állapotsűrűségének pontkontaktus helyén vett integráljával a pontkontaktusra kapcsolt feszültség által meghatározott energia ablakban.

3.3. Oszcilláló függvények Fourier-analízise

Az oszcilláló adatsorok (például vonalhibák mentén kialakuló állapotsűrűség-hullámok) FFT algoritmussal számolt diszkrét Fourier-spektrumának tulajdonságai olyan megállapításokra engednek következtetni, melyek a direkt adatsorból közvetlenül nem meghatározhatóak. Ilyen megállapítás például az oszcilláció lecsengésének jellemzése, mely a Fourier-spektrum szingularitásainak alakjától függ, azonban a szingularitások hiányából is fontos következtetések szűrhetőek le.

4. Eredmények és következtetések

4.1. Rashba-féle spin-pálya kölcsönhatás anizotróp modellje grafénben

Grafénben a Dirac-ponthoz közeli elemi gerjesztéseket általában izotróp viselkedéssel jellemzik az irodalomban. A kristályrács hatszöges szimmetriája csupán magasabb energiatartományban befolyásolja a vezetési elektronok dinamikáját ezekben az esetekben. Ezzel szemben az általam kidolgozott effektív modell az elemi gerjesztések anizotróp viselkedését jósolja a Dirac-ponthoz közeli energia tartományban is. A témához kapcsolódó eredményinkről az [1]-es publikációinkban számoltunk be.

a. A burkoló-függvény közelítés egyszerűbb megfogalmazása

Értekezésemben rámutattam, hogy az irodalomban burkoló-függvény (*envelope function*) közelítés néven ismert eljárással fizikailag ekvivalens eredményre juthatunk lényegesen egyszerűbb számolási eljárással is.

b. A spin-pálya kölcsönhatás hosszuhullámú modellje

Munkám során megmutattam, hogy a Rashba-féle spin-pálya kölcsönhatás szorosan kötött elektron modelljének hosszuhullámú közelítése egyrétegű grafénben a kétrétegű grafén elektronjait leíró Hamilton-operátorral unitér ekvivalens modellre vezet. Az eredmény azért is meglepő, mivel a két rendszer fizikailag nagy mértékben különbözik egymástól [1].

c. A Bloch-állapotok spin-polarizációjának és disperziójának szimmetriatulajdonságai

Bár az elemi gerjesztések alacsonyenergiás spektrumában a Rashba-féle spin-pálya kölcsönhatás egy Dirac-kúp helyett négy Dirac-kúpot eredményező háromszöges torzulást okoz, az elemi gerjesztések spin-polarizációja az impulzus függvényében továbbra is forgásszimmetriát mutat. A háromszöges torzulás a spin-polarizációt csupán magasabb rendű korrekciókban befolyásolja [1].

d. A Rashba-féle és a belső spin-pálya kölcsönhatás kapcsolata grafénben

Annak ellenére, hogy a háromszöges torzulás karakterisztikus energiaskálája összemérhető a grafén belső spin-pálya kölcsönhatásával (realisztikus mérési és első elvekre alapozott eredményeket tekintve), megmutattam, hogy a belső spin-pálya kölcsönhatás nem bontja fel a spektrum Rashba-féle spin-pálya kölcsönhatás okozta háromszöges torzulás szerkezetét [1].

4.2. Alrács-aszimmetria hatása a fotoelektronok spin-polarizációjára

Az elektron spinjéhez (akár közvetett módon is) csatolódó kölcsönhatások befolyásolni tudják a fotoelektronok spin-polarizációjának eloszlását. A grafén alrács-aszimmetriája az elektron spinjéhez a spin-pálya kölcsönhatáson keresztül csatolódik. A témához kapcsolódó eredményinkről a [2]-es publikációnkban számoltunk be.

a. A fotoelektronok spin-polarizációjának elméleti leírása

A fotoelektronok spin-polarizációjának vizsgálatához egy általános összefüggést vezettem le, mellyel tetszőleges fizikai operátor fotoelektronokra vonatkozó várható értéke meghatározható, közvetlenül a Bloch-állapotokat leíró Hamilton-operátor mátrixelemeiből. Ezzel a módszerrel nem szükséges az állapotokat leíró hullámfüggvények meghatározása, aminek következtében mentesülünk a hullámfüggvény fázisának folytonossági problémáitól a numerikus számolások során [2].

b. A Bloch-állapotok alrács-aszimmetria által indukált merőleges spin-polarizációja

Értekezésemben megmutattam, hogy a véges alrács-aszimmetria és spin-pálya kölcsönhatás a grafén síkjára merőleges spin-polarizációt indukál a Bloch-elektronok spin-eloszlásában, míg alrács-aszimmetria nélkül az elektronok spinje a grafén által meghatározott síkba esik. A merőleges spin-polarizáció lecsengése az impulzus-térben nem függ az alrács-aszimmetria nagyságától, a spin-pálya kölcsönhatás erőssége határozza meg [2].

c. Az alrács-aszimmetria hatása a fotoelektronok spin-polarizációjára

A fotoelektronok spin-polarizációjának eloszlása az alrács interferencia következtében lényegesen eltér a Bloch-elektronok spin-polarizációjának eloszlásától. Az alacsony intenzitással jellemzett ún. *sötét folyosóban* a fotoelektronok grafén síkjára merőleges spin-polarizációja véges értéket vesz fel, míg a sötét folyosón kívül a grafén síkjában fekszik [2]. Az értekezésben ugyancsak tanulmányoztam a spin-polarizáció komponenseinek gyors változását a sötét folyosóban. Az alrács-aszimmetria hatása a spin-polarizációra lényeges lehet olyan fizikai rendszerekben, ahol az alrács-aszimmetria és spin-pálya kölcsönhatás egyaránt erősek. Ilyen fizikai rendszert valósít meg például a nemrégiben előállított szilicén (silicene) is.

4.3. Vonalhibák körül kialakult állapotsűrűség-hullámok leírása

A topologikus szigetelők felületén kialakuló állapotsűrűség-hullámok tanulmányozása kísérleti és elméleti szempontból egyaránt bő irodalommal rendelkezik. A mérések és elméleti jósálatok közti eltérések leginkább Bi_2Te_3 kristály esetében térnek el egymástól, ahol a legnagyobb eltérés tapasztalható a felületi állapotok diszperziójában az Értekezésemben az eddigi elméleti leírásokhoz képest más következtetések alapján határoztam meg a töltéssűrűség-hullámok mérésekben is megfigyelt tulajdonságait. A témához kapcsolódó eredményinkről a [3]-es publikációnkban számoltunk be.

a. A Bi_2Te_3 kristály felületi állapotait leíró effektív modell paramétereinek meghatározása

Az állapotsűrűség-hullámok elméleti modellezése nagy mértékben függ az elemi gerjesztések diszperziójának minél pontosabb leírásától. Az irodalomban elterjedt két paraméteres modell nem elegendő a mért diszperziós és állapotsűrűség görbék pontos leírásához. A modellt két további paraméterrel bővítve, és a paramétereket az említett mérési adatsorokra illesztve, a kísérletekkel való egyezést nagy mértékben növeltem [3].

b. Elektronállapotok kvázi-egydimenziós potenciálon való szórásának unitér szórásmátrixszal való leírása második generációs topologikus szigetelők esetében

A Bi_2Te_3 kristály felületén, vonalhibák mentén kialakuló állapotsűrűség-hullámok irodalomban elterjedt leírásában további hiányosság, hogy a modellt jelentősen egyszerűsítve, a szennyezőkön való szórási folyamatot nem unitér szórásmátrixszal modellezték. A modell egyszerű bővítésével, mely során figyelembe vettem a vonalhibára lokalizált evanescens módusokat is, a szórási probléma megoldását unitér szórásmátrixszal adtam meg, ami fontos következtetésekre vezetett az állapotsűrűség-hullámok dinamikáját illetően. A szórásmátrix unitaritásának következménye például, hogy az állapotsűrűség-hullámok aszimptotikus leírásából dominánsnak feltételezett komponensek egzaktnak kioltják egymást az alkalmazott potenciál profiljától függetlenül [3].

c. Bi_2Te_3 kristály felületén kialakuló állapotsűrűség-hullámok viselkedése a vonalhibához közeli tartományban

A vonalhiba mentén létrejött állapotsűrűség-hullámok vizsgálata során megmutattam, hogy a Bi_2Te_3 kristály felületén végzett mérési eredményekkel kitűnő egyezést mutatnak az elméleti számolásaim, amennyiben nem csupán az állapotsűrűség-hullámok aszimptotikus viselkedését leíró modellek jóslatait tekintjük, de figyelembe vesszük a vonalhibához képest közelebbi tartományban domináló (de az aszimptotikus tartományban már eltűnő) járulékokat is. Az állapotsűrűség-hullámok karakterisztikus hullámszámát – a méréseknek megfelelő orientációban – a csoportsebesség vonalhibával párhuzamos komponensének minimális helye (azaz az inverzének maximuma) szabja meg a reciprok tér állandó energiás kontúrján. Az oszcilláció adatsorainak Fourier-spektrumából arra a következtetésre jutottam, hogy az aszimptotikus viselkedést jellemző hatványszerű lecsengéssel ellentétben, az állapotsűrűség-hullámok a vonalhibához közelebbi tartományban inkább exponenciális lecsengést mutatnak [3]. Egyéb orientációjú vonalhiba esetében, amikor léteznek az aszimptotikus viselkedés feltételeként párhuzamosan futó energiakontúr-re-

szek a szórási irányban, eredményeim megegyeznek az aszimptotikus viselkedést leíró jóslatokkal. Bár eredményeimet speciális szórási potenciál esetére határoztam meg, a jelenségek fizikai magyarázatát az elemi gerjesztések spektrumával magyaráztam. Következtetésem ezért várhatóan nem veszít érvényüket más alakú szórási potenciál esetében sem.

5. Az értekezéshez kapcsolódó publikációk

1. P. Rakya, A. Kormányos, and J. Cserti, *Trigonal warping and anisotropic band splitting in monolayer graphene due to Rashba spin-orbit coupling*, Phys. Rev. B **82**, 113405 (2010).
2. P. Rakya, A. Kormányos, J. Cserti, *Effect of sublattice asymmetry and spin-orbit interaction on out-of-plane spin polarization of photoelectrons*, Phys. Rev. B **83**, 155439 (2011).
3. P. Rakya, A. Palyi, J. Cserti, *Electronic standing waves on the surface of the topological insulator Bi_2Te_3* , arXiv:1111.6184 (2011).